## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number:

(43)Date of publication of application: 31.10.1991

(51)Int.CI.

CO8G 61/00

(21)Application number: 02-043930

H05B 33/14

SUMITOMO CHEM CO LTD

(22)Date of filing:

23.02.1990

(71)Applicant: (72)Inventor:

NAKANO TSUYOSHI

**DOI HIDEJI** 

**NOGUCHI MASANOBU** ONISHI TOSHIHIRO

### (54) ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

#### (57)Abstract:

PURPOSE: To obtain an organic electroluminescent element which can be easily formed into a thin film and has a large area and a high luminous efficiency by using a conjugated polymer having specified repeating units as a luminescent layer. CONSTITUTION: An organic electroluminescent element having a luminescent layer between a pair of electrodes at least one of which is transparent or translucent, wherein a conjugated polymer having repeating units of the formula (wherein Ar is a 6C or higher aromatic hydrocarbon group or a ring-substituted group derived by introducing 1-2 substiluents of 1-22C hydrocarbon groups or 1-22C alkoxy groups into the aromatic hydrocarbon group) is used as the luminescent layer. When this polymer is used as a luminescent material, an organic electroluminescent element which can be easily formed into an even thin film by spin coating or casting and has a large area and a high luminous efficiency can be obtained. It can be desirably used as a surface illuminant as a backlight or a device such as a flat panel display.

$$-A r - GI = GII -$$

#### **LEGAL STATUS**

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

#### 19日本国特許庁(JP)

① 特許出願公開

# ◎ 公 開 特 許 公 報(A) 平3-244630

fint. Cl. 5

識別記号

庁内整理番号

❸公開 平成3年(1991)10月31日

C 08 G 61/00 H 05 B 33/14 NLF.

8215-4 J 8815-3 K

審査請求 未請求 請求項の数 1 (全5頁)

**劉発明の名称** 有機エレクトロルミネツセンス素子

住友化学工業株式会社

②特 願 平2-43930

信

**匈出 願 平2(1990)2月23日** 

**@発明者中野** 

茨城県つくば市北原6番 住友化学工業株式会社内

⑫発 明 者 土 居

願人

勿出

秀 二 茨城県つくば市北原 6番 住友化学工業株式会社内

@発明者 野口 公

茨城県つくば市北原6番 住友化学工業株式会社内

⑩発明者 大西 敏博

茨城県つくば市北原 6 番 住友化学工業株式会社内 大阪府大阪市中央区北浜 4 丁目 5 番33号

四代 理 人 弁理士 諸石 光凞

外1名

#### 明細音

#### 1. 発明の名称

有機エレクトロルミネッセンス素子

#### 2. 特許請求の範囲

(1)少なくとも一方が透明または半透明である一対の電極間に発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、該発光層として、一般式

#### - A r - CH = CH -

(Arは炭素数 6 以上の芳香族炭化水素基、あるいは弦芳香族炭化水素基に炭素数 1 ~ 22の炭化水素基、または炭素数 1 ~ 22のアルコキシ基を 1 ないし 2 個置換した核置換体基を表す。)で示される繰り返し単位を有する共役系高分子を 用いることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

#### 3. 発明の詳細な説明

#### 〔産業上の利用分野〕

本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子 に関するものであり、詳しくは、作製方法が簡便 で安価な各種表示装置の発光体として用いられる 有機エレクトロルミネッセンス素子に関するもの である。

#### 〔従来の技術〕

有機蛍光材料を用いたエレクトロルミネッセンス素子(以下EL素子という)は、無機EL素子にくらべ、駆動電圧が低くて輝度が高く、どのような色の発光も容易に作ることができるという特徴があり、多くの試みが報告されていた。

#### (発明が解決しようとする課題)

これまで報告されてきた有機物EL業子は発光 暦を真空中で蒸着することにより作製していた。

しかしながら、真空蒸着法では大量生産に向かって、また大面積の素子を作製するには軽度が性のまた、EL案子をLCDなどの非発性化ののまた、大田明として用いる場合、大面積化化のの状は大きく、大量生産もひみである。とこれでよく用いる場である。というにはない。キャンキックのは、キャン・サントが質を発光層に用いた場合、単独物低分子蛍光物質を発光層に用いた場合、単独

の物質では塗布による薄膜化は容易ではない。したがって、EL素子のために薄膜を作製しよった。 真空蒸着法等、限られた製膜方法しいか 代表とした高分子半導体にペリレンやトリフェを 水ブタジェングしてEL素子の発光層に はながある (Polymer.. 24,748(1983)) が、膜の強度や均一な発光面を得るのに問題がある。

[課題を解決するための手段]

従来、導電性高分子として検討されている共役系高分子の中で蛍光を示すものがあることに着目して鋭意検討した結果、共役領の短いものを発光材料として用いると、スピンコーティング法やキャスト法等によって簡便に薄膜化が可能で、しかも大面積で発光効率の高いEL素子が得られることを見い出し、本発明に到達した。

すなわち、本発明は、一般式(Ⅰ)

- A r - CH = CH -

( t

(Arは炭素数 6 以上の芳香族炭化水素基、あ

次に、特開昭59-199746号公報に記載の脱ハロ ゲン化水素法では一般式(Ⅲ)

 $X_1 - CH_2 - Ar - CH_2 - X_1$  (III)

(Arは炭素数 6 以上の芳香族炭化水素基、または炭素数 4 以上のヘテロ環芳香族炭化水素基、X1はハロゲンを表す。)

で示されるシハロゲン化合物を溶液中で、tープトキシカリウムなどのアルカリにより縮重合する ことにより一般式(I)の共役系高分子を得るこ るいは該方香族炭化水素基に炭素数 1 ~22の炭化水素基、または炭素数 1 ~22のアルコキシ基を 1 ないし 2 個置換した核置換体基を表す。)で示される繰り返し単位を有する共役系高分子を発光層として用いることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子(以下有機 E L 素子と呼称する。)を提供することにある。

以下に本発明について詳細に説明する。

本発明の育機EL素子の発光層として用いる一般式(1)に示す共役系高分子の合成法は特に限定されないが、例えば以下に述べるようないくつかの方法を用いることができる。

特開昭59-199746および特開平1-254734号公 報に記載されているスルホニウム塩分解法では一 般式 (II)

 $B - CH_z - Ar - CH_z - B \qquad (\Pi)$ 

(Arは炭素数 6 以上の芳香族炭化水素基、または炭素数 4 以上のヘテロ環芳香族炭化水素基、Bは S<sup>+</sup> X<sup>-</sup> (R<sub>1</sub>およびR<sub>2</sub>は炭素数 1 ~ R<sub>1</sub>

とができる。

Wittig反応法では、上記一般式(II)で示されるジハロゲン化合物にトリフェニルホスフィンなどを作用させ、ホスホニウム塩としてこれをジアルデヒド化合物(CHO-Ar-CHO, Arは上記のものと間様)を反応させて一般式(I)の共役系高分子が得られる。

以上の合成方法のうちで、スルホニウム塩分解法、脱ハロゲン化水素法が、発光材料により適した、重合度が比較的高く、共役鎮長の比較的短い 共役系高分子が得られるので舒ましい。

上記の共役系高分子中の炭素数 6 以上の芳香族 炭化水素基としては炭素数 6以上の芳香環化合物、 あるいはその核置換体が好ましい。炭素数 6 以上 の芳香環化合物としては p ーフェニレン、 2, 6-ナ フタレンジイル、 5, 10-アントラセンジイルが例 示され、好ましくは p ーフェニレンである。核置 換芳香族炭化水素基としては炭素数 1 ~ 22の炭化 水紫基または炭素数 1 ~ 22のアルコキシ基を 1 な いし 2 個核置換したものが好適に用いられる。 置換基である炭素数1~22の炭化水素基置換基と してはメチル、エチル、プロピル、ブチル、ペン チル、ヘキシル、ヘプチル、オクチル、ラウリル、 オクタデシル基などが例示される。また、炭素数 1~22のアルコキシ基としてはメトキシ、エトキ シ、プロピルオキシ、ベンチルオキシ、ヘキシル オキシ、ヘプチルオキシ、オクチルオキシ、ラウ リルオキシ、オクタデシルオキシ基等が例示され る。核置換芳香族基について、より具体的にはそ ノメチルーローフェニレン、モノメトキシーロー フェニレン、2,5-ジメチル-p-フェニレン、 2.5-ジメトキシーローフェニレン、モノエチル -p-フェニレン、2.5-ジエトキシーp-フェ ニレン、2,5-ジェチルーp-フェニレン、モノ ブチルーローフェニレン、モノブトキシーローフ ェニレン、モノブチルーローフェニレン、2.5-ジプトキシーp-フェニレン、2,5-ジヘプチル -p-フェニレン、2,5-ジヘプトキシーp-フ ェニレン、2.5-ジオクチル-p-フェニレン、 2.5-ジオクトキシーローフェニレン、2.5-ジ

ラウリルーpーフェニレン、2,5-ジラウリルオキシーpーフェニレン、2,5-ジステアリルーpーフェニレン、2,5-ジステアリルオキシーpーフェニレン等が例示される。

p - フェニレン、p - フェニレン核置換体が発光 輝度の高い有機ELを与えるので好ましい。

使用する一般式(I)の共役系高分子をスピンコート法あるいはキャストはで均容である。重にはその分子量は十分高いことが必要である。重合度は5以上であり、より好ましくは10~50000である。具体的にはゲルパーミエションクロマトグラフィーによる分子量を有するものがより効果的である。

スルホニウム塩分解法で得られる高分子中間体を用いる場合には、共役系高分子に転換するために側鎖の脱離処理を行う。 脱離処理として光エネルギー、熱を与える方法が一般的であるが、加熱処理が好ましい。 側鎖の熱脱離処理によって共役

鎖長を形成させる際、熱処理温度によって共役鎖 長を規定できる。すなわち、ある一定の温度以下 であれば熱処理温度が高いほど共役競長が長くな る。したがって熱処理温度としては共役額長を調 節するため、一般的に、発光材料として用いる場 合は比較的共役領長が短い方が好ましいので低温 加熱処理を行うのが好ましい。具体的な熱処理温 度例としてポリーローフェニレンビニレンスルホ ニウム塩中間体を挙げると、発光材料として用い る場合は室温~200℃で熱処理を行うのが好まし い。熱処理時間については、側鎖の脱離反応が起 こる時間であれば特に制限はなく、一般的にはIO 分~20時間、好ましくは30分~8時間程度である。 熱処理する際の雰囲気については、高分子フィル ムの変質が起こらない雰囲気、特に酸素、空気に よる酸化反応が起こらない雰囲気であれば特に限 定されず、一般的にはNi、Ar、He等の不活性が ス雰囲気であり、また真空下あるいは不活性媒体 中であってもよい。

高分子中間体スルホニウム塩の対イオンXでにつ

いては、C1-、Br-等のハロゲンイオン、さらにそのハロゲンイオンを置換することによって、BF・、
pートルエンスルホン酸イオンの種類によってもできる。対イオンの種類により、カチ中間体スルホニウム塩の性質は異なり、ハコングである方が無脱離反応が起きやすい。対イオンがBF・の場合にはN、Nージメチルホルムアミド等の有機溶媒可溶となり、pートルエンスルホン酸イオンの場合には高分子スルホニウム塩中間体側鎖をアルコキシ基化することが可能である。

本発明のEL素子の構造を第I図に示す。EL 素子の製造過程で用いる透明な薄膜電極としては 導電性の金属酸化物膜。半透明の金属薄膜等が用 いられる。この電極の材料として具体的には、イ ンジウム・スズ・オキサイド(ITO)、酸化ス ズ(NESA)、Au、Pt、Ag、Cu等が用いられ、 膜厚としては50人~Iμa程度、好ましくは、100 人~500人程度であり、作製方法としては、真空 落着法、スパッタリング法、メッキ法などが用い られる。

上記の共役系高分子の発光層は、一般式(1)で示される高分子中間体の溶液を電極上にスピンコーティング法、キャスト法で薄膜を形成することができる。また、共役系高分子自体が溶媒に可溶な場合は、共役系高分子の溶液を同様にして薄膜を形成することできる。

発光層の膜厚は特に限定されないが、たとえば 50Å~10μm、電流密度を上げて発光効率を上げ るために好ましくは100Å~ Ιμπである。

本発明の有機EL素子は例えば第1図で示すように、透明基板1上に前記の透明電極2、共とに前記の発光局3、電極4を取次ける目の発光局3、電極4を取次ける目的の発光局の片側または両側に設けるの片側または「電荷輸送層/発光局)または(電荷輸送層/発光局)を設ける構造をとることをできる。

電荷輸送層としては、例えば特開昭59-194393

号公報等に記載の公知の化合物を用いることができる。具体的にはトリフェニルジアミン誘導体、ペリレン誘導体等が好ましく挙げられる。さらにポリー2、5ーチエニレンビニレン等の共役系高分子等も用いることができる。

本発明のEL素子の電子注入陰極の材料としては、AI、In、Mg、MgーAg合金、InーAg合金、グラファイト薄膜等のイオン化エネルギーの小さい金風が好ましく用いられる。膜厚は50人~1μmの業子をできる限り薄くするために好ましくは、500人~1000人で、作製方法としては真空蒸着法、スパッタリング法等が用いられる。

#### (発明の効果)

本発明のEL素子における発光層は熱的に安定であり、共役系高分子中間体あるいは共役系高分子は有機溶媒に可溶であり賦形性に富み、素子作製が容易に行える。

本発明によるEL素子によれば、バックライトとしての面状光顔、フラットパネルディスプレイ等の装置として好適に使用される。

#### 〔実施例〕

以下、実施例により本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらによって何ら制限されるものではない。

#### 実施例 [

特開平 1 -79217号公報に記載の方法に従い、2.5-ジへプチルオキシー p ーキシリレンジブロミドを t ーブトキシカリウムで縮重合して、ポリー2.5-ジへプチルオキシー p ーフェニレンビニレン (HO-PPV)を得た。このクロロホルム溶液を、ITO薄膜をスパッタリングにより1000人の厚みで質のスピンコーティング法により1000人の厚みで塗布し、発光層とした。さらに、その上にAg電極を蒸着によって1000人の厚みで作製した。ITO電極、A1電極には銀ペーストで端子をとり、エポキシ樹脂で固定した。

作製した有機EL素子に、電圧40Vを印加したところ、2.5mA/cm<sup>2</sup>の電流密度で、輝度0.06cd/m<sup>2</sup>の黄橙色の発光が確認された。発光スペクト

ルのピーク波長は580nmでHO-PPVスピンコート薄膜の蛍光のスペクトルと一致していた。また、発光強度は電流密度に比例して増加した。 実施例 2

特開平1-9221 号公報に記載の方法に従い、2.5ーチエニレンジスルホニウムプロミドをアルカリで重合し、メタノールと反応させてポリー2.5ーチエニレンピニレン(PTV)の中間体であるポリー2.5ーチエニレンメトキシエチレンを得た。ITO薄膜をスパッタリングによって200人の厚みで付けたガラス基板に、得られたPTV中間体のN.Nージメチルホルムアミド(以下DMF)的を回転数2000rpmのスピンコーティング法により700人の厚みで塗布した。その後、N・中で200℃、2時間熱処理した。熱処理することによりPTV中間体の膜厚は400人に減少したところ1100cmで、赤外吸収スペクトルを測定したところ1100cmでの中間体特有の吸収ピークがなくなっていたことからPTV構造を確認し、電荷輸送層とした。

次いで、特開昭59-199746の記載に従い、p-

# 特開平3-244630 (5)

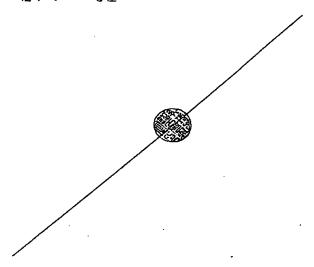
キシリレンビス(ジエチルスルホニウムプロマイド)を水溶液中、水酸化ナトリウム水溶液を腐下して重合し、ポリーpーフェニレンビニレン(以下PPV)の中間体であるポリーpーフェニレンビス(ジエチルスルホニウムプロマイド)エチレン(以下PPV中間体)水溶液を得た。

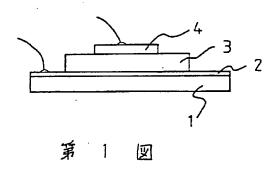
その上に、上記PPV中間体水溶液を回転数2000rpmでスピンコーティングした。このときの腹厚は500人であった。その後、N2中で120℃、2時間熱処理を行った。熱処理後の腹厚は400人であり、赤外吸収スペクトルによって、PPV協造が完全には形成されず、一部中間体保造が残っていることを確認した。さらに、その上に実施例Ⅰと同様にしてAI電極を蒸着して、柔子を完成させた。

作製した2層和恩型案子に、選圧20 Vを印加したところ25mA/cm²の電流密度で、輝度0.05cd/m²の黄色の発光が観察された。発光スペクトルのピーク波長は550nmで、PPV中間体スピンコート項限の蛍光のスペクトルと一致していた。

#### 4. 図面の簡単な説明

第1図は本発明における有機エレクトロルミネッセンス菜子の一実施例の概念的な断面构造を表す図である。





【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載 【部門区分】第3部門第3区分 【発行日】平成10年(1998)10月6日

[公開番号] 特開平3-244630

【公開日】平成3年(1991)10月31日

【年通号数】公開特許公報3-2447

【出願番号】特願平2-43930

【国際特許分類第6版】

C08G 61/00

H05B 33/14

[FI]

C08G 61/00 NLF

H05B 33/14

#### 手锭装正等 (自発)

平成9年2月2/日 色

#### 特许疗员官院

1. 事件の表示

平成2年特許顕第043930号

2. 発明の名称

有機エレクトロルミネッセンス素子

3. 補正をする名

事件との開係 特許出題人

住所 大阪市中央区北級四丁目5番33号

名称 (209) 住女化学工業株式会社

代表者 益 英雄

4. 代理人

住所

大阪市中央区北級四丁目5番33号 名神 住女化学工業株式会社内

**弁理士(9328) 久保山 隆** 氏名

5. 補正により増加する助求項の数 3

6. 補正の対象

明結署金文

7. 補正の内容 別紙の通り

1. 発明の名称

有機エレクトロルミネッセンス菓子

2. 特許請求の範囲

(1) 夕なくとも一方が透明または半透明である一対の電極間に発光層を有する 有機エレクトロルミネッセンス衆子において、放発光層として、一般式\_(!)

-Ar-CH=CH-(1)

(Arは最重要6以上の方き接受化水療法、あるいは数方き接換化水療法に反 素数1~22の炭化水素基、または炭素数1~22のアルコキシ基を1ないし2 国情義した核伝染体基、あるいは炭素数4以上のヘテロ環方音族及化水素基を表 す。)で示される繰り返し単位を有<u>し、下記一般式(I I)</u>

B-CH,-Ar-CH,-B

(Arは前記の定義と同じであり、Bは



[R、およびR、は炭素及1~8のアルキル基、X は対イオン]を表す。)

で示されるモノマーをアルカリと反応させることにより得られる何何にスルホニ ウム塩を有する共役系高分子の中間体、またはそれをアルコール溶媒と反応させ ることにより与られるアルコキン苗を倒壊に有する高分子中同体、またはスルホ 二ウム塩を有する共役系高分子の中間体に芳香族スルホン酸を反応させることに より得られるスルホン鉄塩を倒鎖に有する高分子中間体を室間以上200℃未換 で無処理することで得られる共役基高分子を含む意識を用いることを特徴とする 有機エレクトロルミネッセンス条子。

(2) 少なくとも一方が遺明または単強明である一対の電極間に発光度を存する **有機エレクトロルミネッセンス素子において、鉄角光圀として、緯水項 1 記載の** 一般式(『)で示される繰り返し単位を有し、一般式(『『『)

X,-CH-AI-CH-X,

(Arは商求項1における定義と同じであり、X。はハロゲンを表す。)

で示されるジハロゲン化合位モアルカリモ用いて解放合して扱られる共食系統分子を含む存取を用いることを特徴とする有限エレクトロルミネッセンス来子。
(3) 少なくとも一方が透明または半週明である…対の包括間に発光限を有する行数エレクトロルミネッセンスネテにおいて、放発光程として、神球項1、配理の一位式(1)で示される時り返し単位を有し、原求項2配位の一位式(1 II)で示されるジハロゲン化合物にトリアリールホスフィンを作用させて得られるホスホニウム塩化合物と、一句式(1 V)

OHC-Ar-CHO (IV)

(A: は別求項1における定義と同じであり、X。はハロゲンを設す。)
で示されるシアルデヒド化合物と支配口合して待られる共牧系の分子を含む地域を用いることを特徴とする有能エレクトロルミネッセンス菓子。

#### 3. 発明の評価な脱り

#### (立分上の利用分母)

本党明は、存むエレクトロルミネッセンスが子に関するものであり、群しくは 、作記方法が簡優で安省な各組表示数目の発光体として用いられる存むエレクト ロルミネッセンスの子に関するものである。

#### (従来の技術)

有知館光材料を用いたエレクトロルミネッセンスな子(以下BL数子という) は、緑和BLな子にくらべ、思助利圧が低くて印度が高く、どのような色の見光 も容易に作ることができるという特別があり、多くの試みが現舎されていた。 【発明が存失しようとする句母】

これまで報告されてきた有機物EI. 東子は発光層を真空中で蘇着することによ

[R、およびR、は投算数1~8のアルキル基、X は対イオン]を取す。)で示されるモノマーをアルカリと反応させることにより得られる傾倒にスルホニウム塩を有する共役系高分子の中間体、またはそれをアルコール溶理と反応させることにより得られるアルコキン基をが固に付する高分子中間体、またはスルホニウム型を有する共役系高分子の中間体に方在技スルホン配を反応させることにより得られるスルホン配地を付照に有する高分子中間体を変紅以上200で未換で保险程することで得られる共役系高分子を含む低点を用いる有切エレクトロルミネッセンス分子に係るものである。

また、本角羽は、(2) 少なくとも一方が延明または半进明である一対の口む 関に鬼光母を有する右切エレクトロルミネッセンスな子において、武角光母とし て、前記(1) 記憶の一発式(I) で示される切り返し単位を有し、一点式(I

$$X_i - CH - Ar - CH - X_i$$
 (111)

(Arは前恩(1) における定因と同じであり、X,はハロゲンを収す。) で示されるシハロゲン化合物をアルカリを用いて原定合して得られる共復係高分子を含むが現を用いる有限エレクトロルミネッセンス数子に係るものである。

また、本発明は、(3) 少なくとも一方が過明または半週明である一対の電包 関に発光原を行する存位エレクトロルミネッセンス原子において、威免光原として、原記(1) 記録の一位式(I) で示される口り返し単位を有し、原記(2) 記述の一位式(III) で示されるソハロゲン化合物にトリアリール本スフィン を作用させて得られるホスホニウム蛍化合物と、一位式(IV)

(Arは前記(1)における定益と何じてあり、X。はハロゲンを安す。) で示されるグアルデヒド化合物とを帰立合して得られる共改系高分子を含む対政 を用いる有磁エレクトロルミネッセンス寧子に係るものである。

さらに、本発明は、(4) 発光日に含まれる共役系高分子が、pーフェニレン、2.6ーナフタレンジイル、炭系数1~22のアルキル基が一ないし二旦貸したpーフェニレン、炭条数1~22のアルコキシ凸が一ないし二日貸したpーフェニレン、炭系数1~22のアルキル基が一ないし二日貸した2.6ーナフタレ

り作製していた。しかしながら、真空原育性では大量生産に向かず、家た大面和の菓子を作配するには限度があった。また、EL菜子をLCDなどの非免光性のパックライト期別として用いる場合、大面似化の要求は大きく、大量生産も必要である。ところが、これまでよく用いられているトリス ほーヒドロキシキノリン ) アルミニウムやアントラセン等の有根物証分子象光物質を発光型に用いた場合、且独の份質では控布による初頭化は容易ではない。したがって、EL菜子のために別頭を作製しようとすると、真空基準告で、最られた製品がなしか取り得なかった。また、ポリビニルカルパソールを代表としたあ分子・半導体にペリレンやトリフェニルブタジエンなどの盤光的質を分放させたものをスピンコーティングしてEL菜子の発光はにする試みがある(Polymer、14、748(1983) ) が、原の強なや場一体発光百を合るのに関題がある。

#### (製図を分決するための手段)

従来、 30位在3分子として検討されている共役系高分子の中で放光を示すもの があることにお目して促放位制した結果、 共役組の組いものを発光材料として用 いると、 スピンコーティング法やキャスト法等によって管便に利果化が可能で、 しかも大面積で発光熱草の高いEL科子が得られることを見い出し、 本類切に到 初した。

すなわち、本発明は、(1) 少なくとも一方が回明または半辺明である一対の QG間に発売口を存する存むエレクトロルミネッセンスロ子において、以発光口 として、一個式(I)

(Ar社員収録6以上の方で改員化水公内、あるいは飲予等以降化水森基に費 混放1~22の炭化水森基、または炭森泉1~22のアルコキシ共を1ないし2 団屋協した核配収体式、あるいは炭森破4以上のヘテロ以方行政炭化水泉品を要 す。)で示される似り返し単位を有し、下配一役式(11)

(A rは研究の定位と内じであり、Bは

ンジイル、および競技数 1 ~ 2 2のアルコキシ基が一ないし二位点した2, 6 -ナフタレンジイルからなる即から選ばれる答を少なくとも1つ合む前記(1) ~ (3) のいずれかに記憶の有位エレクトロルミネッセンス発子に係るものである

#### 以下に本発明について群幻に説明する。

本発明の有似EL場子の発光器として用いる一般式 (1) に示す共転基の分子の合成協としては、以下に述べる方法を用いる。

(A r は決定任6以上の方行為操化水業基、あるいは執牙合換機化水業基に換算 限1~22の操化水業基、または基準数1~22のアルコキシ基を1ないし2個 関投した機関技体基、あるいは炭素数4以上のヘテロ類労害減機化水業基を養し

[R,およびR。は、段素数1~8のアルキル基、X<sup>-</sup>は対イオン]を安す。)で示されるモノマーを水が減中、約0℃でアルカリと反応させることにより得られるに頃にスルホニウム塩を有する共役系高分子の中間体、それをアルコール均域と反応させることにより得られるアルコキン基を朗切に有する百分子中間体、あるいはスルホニウム塩を有する共役系高分子の中間体に対容拡スルホン環を反応させることにより得られるスルホン環境を傾倒に有する百分子中間体を開処理することにより一般式(1)に示される共役系高分子を得ることができる。

(Arは、前記の定義と同じであり、X、はハロゲンを収す。)

で示されるジハロゲン化合物を溶液中で、 t ープトキシカリウムなどのアルカリ により拘取合することにより一般式 (!) の共役系高分子を得ることができる。 Vittla反応性では、上記一校式(I I I) で示されるジハロゲン化合物にトリフェニルホスフィンなどのトリアリールホスフィンを作用させ、ホスホニウム塩としてこれをジアルデヒド化合句(OHC-Ar-CHO、Arは上記のものと同様)を反応させて一位式(I) の共役系高分子がわられる。

以上の合成方法のうちで、スルボニウム単分な法、超ハロゲン化水業法が、発 光材料により到した、12合成が比较的高く、共役到長の比較的差い共役系為分子 が得られるので好ましい。

上配の共党系高分子中の段環数6以上の特徴技験化水泵匹として対数率数6以上の 上の 対容 駅化合物。 あるいはその核密 技術が好ましい。 炭泉数6以上の 対容 関化 合物としては p ーフェニレン。 1.6・ナフタレンジイル。 3.10・アントラセンジイルが何示され、 好ましくは p ーフェニレンである。 核配換 対容 裁误化水 辞述として では 検索数1~22の 数化水 森 結または 世界数1~22の アルコキシ 品を1ない し2 の が にない と もの が 好づに 用いられる。

**団投基である改立致 1 ~ 2 2 の数化水均基以換基としてはメチル、エチル、ブ** ロビル、プチル、ペンチル、ヘキシル、ヘプチル、オクチル、ラウリル、オクタ デシルはなどが付示される。また、皮森は1~22のアルコキシ基としてはメト キシ、エトキシ、プロピルオキシ、ベンチルオキシ、ヘキシルオキシ、ヘプチル オキシ、オクチルオキシ、ラウリルオキシ、オクタデシルオキシ芒等が保示され る。 粒配投資登録器について、より具体的にはモノメチルー ローフェニレン、モ ノメトキシーローフェニレン、45 ージメデルーローフェニレン、45 ージメト キシーヮーフェニレン、モノエチルーヮーフェニレン、2.5 ージエトキシーヮー フェニレン、1,6 ージエチルー pーフェニレン、モノブチルー pーフェニレン、 モノプトキシーローフェニレン、モノプチルーローフェニレン、16 ージプトキ シーpーフェニレン、4.5 ージヘプチルーpーフェニレン、4.5 ージヘプトキシ ーローフェニレン、25 ージオクチルーローフェニレン、25 ージオクトキシー ローフェニレン、2.5 ージラウリルーローフェニレン、2.5 ーグラウリルオキシ ーゥーフェニレン、15 ージステアリルーゥーフェニレン、15 ージステアリル オキシーpーフェニレンタが何示される。これ6の中でpーフェニレン、pーフ ェニレン校団負体が発光印度の高い存むELを与えるので好ましい。

本党内のEL案子の和適を応1圏に示す。 P.L. 公子の資道過程で用いる通明な や試に応としては取る性の金具は化物域。 半途明の金属が既守が用いられる。 こ ので置の材料として具体的には、インジウム・スズ・オキサイド(「TO)、 最 化スズ(NESA)、AB、PI、AB、CU等が用いられ、成功としては30A~1μm 組成、拝ましくは、100 A~600 A包度であり、中観方法としては、其型高力性 、スパッタリング法、メッキ法などが用いられる。

上記の共敬素高分子の発光口は、一体式 (f) で示される高分子の中間体の辺 版を以口上にスピンコーティング性。キャスト法で契照を形成することができる。 また、共敬素高分子自体が溶域に可溶な切合は、共敬系四分子の溶剤を同期に してお回を多成することできる。

発光口の意味に特に限定されないが、たとえば0人~10μm、Q液包度を上げて発光的学を上げるために好ましくは100人~1μmである。

本発明の有数BL分子は例えば第1両で示すように、強明基据1上に前記の股 明日数2、共役系統分子の見光日3、数数4を原次設けることにより得られるが 、より角光効率を上げる目的で日前に強体層を放用光日の片切または円倒に設け る、すなわら、通明数数上に(発光日/日前改送日)(気質均速度/発光日)ま たは(気度物数日/気光日/日前数日)を設ける初級をとることもできる。

電供協送費としては、例えば特価階59-194393号公祭等に配収の公知 の化合物を用いることができる。具体的にはトリフェニルジアミン前場体、ペリ レン認以中心が好ましく挙げられる。さらにポリー2,6 −チエニレンピニレン等 の共役基高分子でも用いることができる。

本発明のEL立子の電子社入院型の材料としては、A1、In、地、版一版合金。 In-Ag合金、グラファイト和数字のイオン化エキルギーの小さい金属が好在しく 用いられる。 処界は50人~1μmの以子をできる扱り和くするために好ましくは 、500人~1080人で、作数方法としては其空類な法、スパッタリング法学が用い られる。

#### (発明の効果)

本発明のビレス子における発光口は扇的に変定であり、共役系高分子中両体あるいは共役系高分子は有心療器に可控であり試形性に含み、 な子作成が容易に行

使用する一度式(I)の共役系高分子をスピンコート伝わるいはキャスト括で 均一な存取を得るにはその分子員は十分高いことが必要である。 直合底は5以上 であり、より併ましくは10~5000である。具体的にはグルパーミエショ ンクロマトグラフィーによる分子口調定において分子員2800の関中ポリスチ レンに相当する冷銀符出位置以前に治出する高分子員を有するものがより効果的 である。

高分子中間がスルホニウム板の対イオンな「については、Cl'、Br' 好のハロ ゲンイオン、さらにそのハロゲンイオンを記録することによって、町。、 pートルエンスルホン破イオン母の化合切イオンとすることもできる。対イオンのむ 頃によって点分子中間体スルホニウム粒の性質は異なり、ハロゲンイオンを例に とればは「よりもBr' が対イオンである方が熱熱に反応が起きやすい。対イオン が町。の場合には、Kr ージメテルホルムアミド等の有句段級可能となり、pート ルエンスルホン殴イオンの切合には高分でスルホニウムを中間体疑問をアルコキ シ茲化することが可能である。

#### **25.**

本発明によるE12君子によれば、パックライトとしての面状光紅、フラットパ キルディスプレイなの核社として好道に使用される。

#### (安悠好)

以下、お告的により本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらによって何ら舒服されるものではない。

#### 究政例 1

や約平1-79217号公領に配収の方法に従い、1、5-ジへプチルオキシー pーキシリレンジプロミドを(-プトキシカリウムで施旦合して、ポリー3.5 -ジへプチルオキシーpーフェニレンピニレン(HO-PPV)を得た。このクロ ロホルム協設を、ITO科展をスパッタリングによって200 人の瓜みで付けたガ ラス造板上に砂底数2000mm のスピンコーティング法により1000人の瓜みで協市 し、発光口とした。さらに、その上にAI 特別を選却によって1000人の瓜みで体 組した。ITO和私、AI 印料には個ペーストで対于をとり、エポキン供給で個 生した。

作型した有級ELカ子に、位圧40Vを印加したところ、1 5mA/cm の電讯倍度で、原医5.08cd/cm の設置色の発光が超認された。発光スペクトルのピーク 被負は580cm でHO-PPVスピンコート収収の変光のスペクトルと一致していた。また、発光強度は対接地放に比例して増加した。

#### 與遊研 2

特徴平1-9221号公領に配成の方法に従い、15-デエニレンジスルホニウムプロミドをアルカリで取合し、メタノールと反応させてポリー25-デエニレンピニレン (PTV) の中間体であるポリー25-デエニレンメトキシエチレンを得た。1TOPUでスパッタリングによって100人の厚みで付けたガラス基板に、得られたPTV中間体の8.N-ジメチルボルムアミド(以下DMF)溶液を回転数1000cpmのスピンコーティング法により100人の厚みで急者した。その後、N,中で200て、2時間触処型した。熱処型することによりPTV中間体の原理は100人に就少していた。ここで、分外数収入ペクトルを測定したところ1100cmでの中間体料布の吸収ピークがなくなっていたことからPTV将着を範疇し

. C(肉口送月とした。 次いで、特別項69-199746 の記章に従い、pーキシリレンビス (ジエチルスルホニウムプロマイド) を水溶液中、水酸化ナトリウム水溶 放を取下して混合し、ポリーpーフェニレンビニレン (以下PPV) の中間体であるポリーpーフェニレンビス (ジエテルスルホニウムプロマイド) エチレン (以下PPV中間体) 水熔液を得た。

その上に、上記PPV中間体水溶液を回転数2080cm でスピンコーティングした。このともの配原は500 人であった。その後、N,中で120 で、2時間熱型を行った。配型型後の口原は400 人であり、赤外吸収スペクトルによって、PPV构造が完全には形成されず、一部中間体相当が残っていることを摂取した。さらに、その上に実施的1と四級にしてA1 配包を養着して、発子を完成させた。

作役した2回的日型カテド、包圧10Vを印加したところ15m A/c㎡ の貸債を 限で、灯度0.45cd/m の貸色の発光が良安された。発光スペクトルのピーク資品 は350m で、PPV利息の登光のスペクトルと一致していた。

#### 4. 図図の間草な説明

□ 1 回は本別時における有的エレクトロルミネッセンス及子の一致筋例の伝念 的な原面報道を設す間である。

1 ……近明比极、2 ……近明口过、3 …… 発光 口、4 …… 口拉

# This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record

# **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

□ BLACK BORDERS
□ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
□ FADED TEXT OR DRAWING
□ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
□ SKEWED/SLANTED IMAGES
□ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
□ GRAY SCALE DOCUMENTS
□ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
□ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY

# IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

☐ OTHER:

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.